

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2005 年10 月27 日 (27.10.2005)

PCT

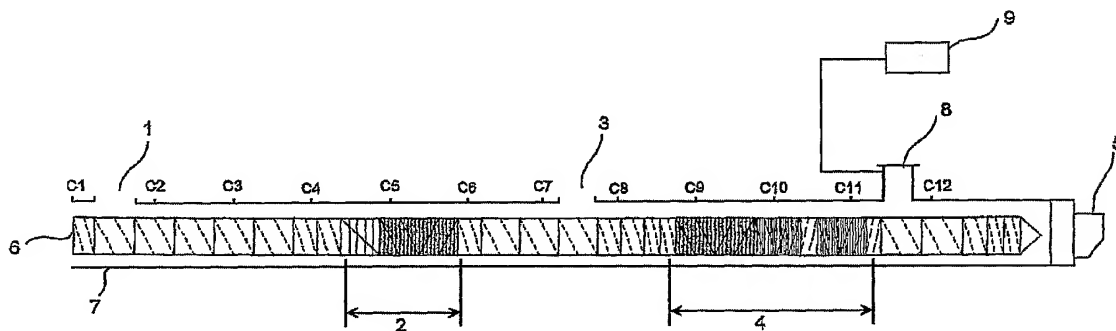
(10) 国際公開番号  
WO 2005/099984 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: B29B 9/14, 11/10, 11/16, C08K 7/04 // B29K 105:12 (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 青木 啓 (AOKI, Kei) [JP/JP]; 〒416-8533 静岡県 富士市 宮島 973 番地 ポリプラスチック株式会社内 Shizuoka (JP). 坂井 晶行 (SAKAI, Masayuki) [JP/JP]; 〒416-8533 静岡県 富士市 宮島 973 番地 ポリプラスチック株式会社内 Shizuoka (JP). 渡辺 一史 (WATANABE, Kazufumi) [JP/JP]; 〒416-8533 静岡県 富士市 宮島 973 番地 ポリプラスチック株式会社内 Shizuoka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/007368
- (22) 国際出願日: 2005 年4 月12 日 (12.04.2005)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2004-120860 2004 年4 月15 日 (15.04.2004) JP (74) 代理人: 古谷 聡, 外 (FURUYA, Satoshi et al.); 〒103-0007 東京都 中央区 日本橋浜町 2-17-8 浜町花長ビル 6 階 Tokyo (JP).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ポリプラスチック株式会社 (POLYPLASTICS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒108-8280 東京都 港区 港南二丁目 18 番 1 号 Tokyo (JP). (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM,

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING RESIN COMPOSITION PELLET CONTAINING FIBROUS FILLER HAVING CONTROLLED LENGTH

(54) 発明の名称: 繊維状充填剤の長さが制御された樹脂組成物ペレットの製造方法



(57) Abstract: A method for producing resin composition pellets wherein 80 to 55 wt % of a resin and 20 to 45 wt % of a fibrous filler having a weight average fiber length of 1 mm or more are supplied to an extruder, to produce resin composition pellets having a weight average fiber length of the fibrous filler contained therein of 180 to 360  $\mu$ m, which comprises feeding an amount (x) of a part of the resin from the main feed port of the extruder and feeding the fibrous filler and the remaining amount (1 - x) of the above resin from a side feed port, in such a manner that x/(1 - x) is 50/50 to 10/90 wt % ratio. The above method can be suitably used for producing resin composition pellets containing a prescribed content of a fibrous filler being uniformly dispersed and having a prescribed weight average fiber length, by the use of a general extruder, with the inhibition of deterioration of the resin, with good economy, in particular, for producing resin composition pellets for use in forming a planar socket for a semiconductor which has a pitch separation in a lattice portion of 2.0 mm or less, a thickness of the lattice portion of 0.5 mm or less, a height of a socket of 5.0 mm or less.

(57) 要約: 本発明の目的は、繊維状充填剤が、所定充填量で、均一に配合され、所定重量平均繊維長を有する樹脂組成物ペレットを通常の押出機により、樹脂の劣化を抑え、経済的に製造することであり、特に格子部ピッチ間隔が2.0mm以下、格子部肉厚が0.5mm以下、ソケットの高さが5.0mm以下の半導体装置用平面状ソケットの成形に用いられる樹脂組成物ペレットを製造することであり、目的を解決するために、樹脂80～55重量%と重量平均繊維長1mm以上の繊維状充填剤20～45重量%を押出機に供給して、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤の重量平均繊維長が180～360 $\mu$ mの樹脂組成物ペレットを製造する際、押出機のメインフィード口から樹脂の一部の量(x)を供給し、サイドフィード口から繊維状充填剤及び上記樹脂の残りの量(1-x)をx/(1-x)が50/50～10/90重量%比となるように供給する。

WO 2005/099984 A1



DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

## 繊維状充填剤の長さが制御された樹脂組成物ペレットの製造方法

## 技術分野

本発明は、押出機を使用して、樹脂に繊維状充填剤を添加して、特定の重量平均繊維長、さらには特定の繊維長分布を有する樹脂組成物ペレットを、経済的に製造する方法に関する。該ペレットは、半導体装置のピンのソケット、特に、多数のピン孔が設けられた格子部のピッチ間隔が2 mm以下のソケットの成形に適する。

## 背景技術

従来、押出機を用いて樹脂にガラス繊維などを混練する場合に、樹脂の熔融粘度が非常に低い場合には、樹脂をメインフィード口から投入し、繊維をサイドフィードして得られたペレットを用いて射出成形すると、ピッチ間隔の狭い半導体装置のソケットなどを成形した場合に、十分な流動性が得られないために完全に充填した成形品が得られないか、又は無理に充填させると充填圧が高いために得られるソケットの反り変形量が大きくなるという問題があった。

特開平6-240114号公報（請求項1、実施例の表1参照）では、（A）異方性熔融相を形成する液晶ポリエステル樹脂および液晶ポリエステルアミド樹脂から選ばれた少なくとも1種の液晶性樹脂100重量部に対して、（B）平均繊維径が3～15  $\mu\text{m}$ のガラス繊維5～300重量部を充填してなり、該組成物ペレット中の重量平均繊維長が0.02～0.55 mmの範囲にあって、かつ、繊維長が1 mmを越えるガラス繊維の比率が該ガラス繊維の0～15重量%、かつ、繊維長が0.1 mm以下のガラス繊維の比率が該ガラス繊維の0～50重量%であるガラス繊維強化液晶性樹脂組成物から得られたペレットを射出成形して、

射出成形時の流動長さ、及び成形品の収縮率、面衝撃強度等を求めている。

しかし、この技術は、所望のガラス繊維充填において、ガラス繊維の重量比や平均繊維長を自由に制御する技術ではない。

## 発明の開示

本発明の目的は、繊維状充填剤が、均一に配合され、求める重量平均繊維長（１）を有し、射出成形品にした場合に特定の性能を有する、繊維状充填剤が所望の量充填された樹脂組成物ペレットを、通常の出機により簡便な方法で、樹脂の劣化を抑え、経済的に、樹脂組成物ペレットを製造する方法を提供することである。

特に、格子部のピッチ間隔が２．０mm以下、格子部の肉厚が０．５mm以下、ソケットの高さが５．０mm以下の平面状ソケットに用いられる、繊維状充填剤が配合された樹脂組成物ペレットを製造する方法を提供することである。

本発明者らは、メインフィード口から少量の樹脂を供給し、繊維状充填剤を残りの多量の樹脂と共にサイドフィードすることにより、上記課題が解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち本発明の第１は、樹脂（Ａ）８０～５５重量％と、重量平均繊維長（Ｌ）１mm以上の繊維状充填剤（Ｂ）２０～４５重量％（ここで、樹脂（Ａ）と繊維状充填剤（Ｂ）の合計は１００重量％である。）を射出機に供給して、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（Ｂ）の重量平均繊維長（１）が１８０～３６０μmである樹脂組成物ペレットを製造する際に、射出機のメインフィード口から樹脂（Ａ）の一部の量（ $x$ ）を供給し、メインフィード口より射出方向後方に設けられたサイドフィード口から繊維状充填剤（Ｂ）および樹脂（Ａ）の残りの量（ $1-x$ ）を $x/(1-x)$ が５０／５

0～10／90重量％比となるように供給する樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第2は、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（B）が、繊維長300 $\mu$ m超のものの割合が5～40重量％である本発明の第1に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第3は、樹脂組成物ペレットが、押出機により単通処理されて得られたものである本発明の第1又は2に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第4は、樹脂（A）が液晶性ポリマーである本発明の第1～3のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第5は、繊維状充填剤（B）が、ガラス繊維及び／又はカーボン繊維である本発明の第1～4のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第6は、多数のピン孔が設けられた格子部のピッチ間隔が2.0mm以下、格子部の肉厚が0.5mm以下、ソケットの高さが5.0mm以下の平面状ソケットに用いられる本発明の第1～5のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第7は、押出機が2軸押出機であり、スクリュー長さ／スクリュー径（L／D）の比が20以上であり、スクリューが可塑化部と混練部を有し、サイドフィード口が可塑化部の下流に位置する本発明の第1～6のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第8は、樹脂組成物ペレットの熔融粘度が10～55Pa・sである本発明の第1～7のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第9は、樹脂組成物ペレットを射出成形して得られた成形品が、曲げ弾性率15000MPa以上、及びハンダリフロー処理前の平面度が0.09mm以下、及びピーク温度230～280℃でのハンダリフロー処理相当加熱

前後の平面度の差が0.02mm以下である本発明の第1～8のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明で用いる押出機の一例を示す図である。

第2図は、本発明に係る射出成形品の一例を示す図である。

符号の説明：1はメインフィード口、2は可塑化部、3はサイドフィード口、4は混練部、5はダイ、6はスクリュー、7はシリンダー、8はベント口、9は減圧装置、10は樹脂溜まり、11はピッチ間隔、12は格子部を表す。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下に本発明の実施の形態を説明する。

##### 押出機

本発明に係る押出機は、メインフィード口1、可塑化部2、サイドフィード口3、混練部4、得られた樹脂組成物の押出しダイ5、スクリュー6、シリンダー7、及び必要に応じて設けられるベント口8および減圧装置9を有する。

サイドフィード口3は1個所であっても複数個所であってもよい。

押出機としては、特別な構造のものを用いる必要はなく、例えば、従来使用されているものがそのまま使用できる。具体的には、単軸型、二軸型の何れでもよく、二軸型では、同方向回転の1条ネジのものから3条ネジのものまで使用可能であり、異方向回転の平行軸もしくは斜軸、不完全噛み合い型でもよい。

押出機のスクリュー径、スクリュー長さ／スクリュー径比（ $L/D$ ）、スクリューデザイン、スクリュー回転数、同駆動力、加熱冷却能力には特に制限はなく、本発明が実施できるものを選択すればよい。

通常、スクリューデザインを決定するスクリューエレメントとしては、順フライトからなる搬送用エレメントと、可塑化部用エレメントおよび混練部用エレメ

ントからなるが、本発明において、押出機における可塑化部および混練部のスクリーデザインは、樹脂の性質や充填剤の種類に応じて適宜、設計されるべきものである。

しかし、重量平均繊維長（ $L$ ）の繊維状充填剤（ $B$ ）を所定の重量平均繊維長（ $1$ ）及び繊維長分布に制御するには、後述するように、押出機に関してはスクリー長さ（ $L/D$ ）、可塑化部長さ（ $L/D$ ）、混練部長さ（ $L/D$ ）、スクリーデザインも影響するので、本発明が実施できるように選択する。

2軸押出機の場合、可塑化部や混練部には逆フライト、シールリング、順ニーディングディスク、逆ニーディングディスク等のスクリーエレメントが組み合わされて構成されることが一般的である。

液晶性ポリマーのような溶融粘度が比較的低い樹脂（ $A$ ）に、ガラス繊維のような繊維状充填剤（ $B$ ）を全体中に20～45重量%配合してストランド状に押出すためには、混練部を可塑化部より長く設けることが好ましい。

また、ベント口を設けて減圧排気を行うには、溶融された樹脂組成物が押出機内で完全に充填されるシール部を設けることが好ましい。シール部を構成するスクリー形状は、2軸押出機の場合、逆フライトのほか、シールリング、逆ニーディング等、幾何学的にスクリー回転に対して昇圧能力を有するものが好適に用いられる。また、必要に応じてニーディングディスク等のエレメントが組み合わされて構成されても構わない。

通常は混練部下流で減圧排気し、混練部がシール部を兼ねている。メインフィード口より供給され可塑化された樹脂を繊維状充填剤投入前に減圧排気する場合には、ベント口とサイドフィード口の間にシール部を設けることが好ましい。

押出機の $L/D$ （スクリー長さ／スクリー径）は20以上、好ましくは20～80、さらに好ましくは25～60である。

可塑化部の $L/D$ は、スクリーのデザインや運転条件にもよるが、好ましくは2～15、さらに好ましくは3～10である。可塑化部の長さ（ $L/D$ ）があ

まりに短すぎると、樹脂の可塑化が不十分になり、サイドフィードされた繊維状充填剤が折損しすぎて好ましくなく、可塑化部の長さ（ $L/D$ ）があまりに長すぎると、樹脂が分解して物性低下やガス発生などの不具合が生じる。

混練部の $L/D$ は、スクリーンのデザインや運転条件にもよるが、好ましくは $2 \sim 25$ 、さらに好ましくは $5 \sim 15$ である。混練部の長さ（ $L/D$ ）があまりに短すぎると、繊維状充填剤の折れが不十分になり流動性が低下して好ましくなく、あまりに長すぎると発熱が大きくなり樹脂の分解や炭化、ガス発生などの不具合が生じる。

メインフィード口1への樹脂の供給およびサイドフィード口3への充填剤および樹脂の供給は、定質量または定容量供給装置を介して行われる。定量供給装置としては、ベルト式、スクリー式、振動式などのいずれでもよい。

上記装置を用いて、サイドフィード口3における充填剤と樹脂との供給は、別々にまたは混合して、好ましくは別々の定量供給装置を使用して行われる。具体的には、押出機のシリンダーバレルの側面からスクリーフィーダーにより供給する側面フィード法、シリンダー上部より縦型スクリーフィーダーで押出機に供給する方法、フィード口に副原料を直接落下させる方法等が用いられる。サイドフィード口3は、好ましくは上部に設けられる。

サイドフィード口3には、特に限定はないが、必要に応じて水冷ジャケットを備えて樹脂や充填剤の変化を抑えるようにしてもよい。

## 樹脂

本発明において使用される樹脂（A）は、特に制限はないが、好ましくは熔融粘度が、融点より $15^{\circ}\text{C}$ 高い温度で、ずり速度 $100/\text{s}$ に換算して $1000\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下、さらに好ましくは $50 \sim 500\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、特に好ましくは $10 \sim 100\text{Pa}\cdot\text{s}$ の樹脂である。

樹脂（A）としては、液晶性ポリマー、直鎖PPS、ナイロン6、ナイロン6



6、ナイロン610などが挙げられ、好ましくは液晶性ポリマーである。

液晶性ポリマーとしては、液晶ポリエステルや液晶ポリアミドが挙げられ、具体的には、パラヒドロキシ安息香酸残基／2，6-ヒドロキシナフタレンカルボン酸残基の組み合わせ、パラヒドロキシ安息香酸残基／ビフェノールやヒドロキノンのような芳香族二価ヒドロキシ化合物残基／テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸のような芳香族ジカルボン酸残基の組み合わせ、パラヒドロキシ安息香酸残基／脂肪族ジオール残基／芳香族ジカルボン酸残基の組み合わせ、さらにはこれらにp-アミノフェノール残基などが加えられた組み合わせ、あるいは一部脂肪族基を有するポリエチレンテレフタレートとp-ヒドロキシ安息香酸を共重合したものなどが挙げられる。

少なくともサイドフィード口3から供給される樹脂(A)は、粒径50 $\mu$ m以上の粉末、好ましくは500 $\mu$ m以上の粉末、さらに好ましくは最小辺の長さ又は直径が1mm以上のペレットである。粒径等が上記範囲より小さすぎると、サイドフィード後に直ぐに熔融して、重量平均繊維長(L)の繊維状充填剤をフィードして、均一に混練し、所定範囲の重量平均繊維長(1)とすることが困難であり、さらには所定の繊維長分布とすることが困難になる。

なお、樹脂(A)が二種以上の混合物である場合には、メインフィード口1から供給される樹脂とサイドフィード口3から供給される樹脂の種類は同じであっても、異なってもよい。例えば、樹脂(A)が液晶性ポリマー1と液晶性ポリマー2の混合物である場合、液晶性ポリマー1をメインフィード口1から供給し、液晶性ポリマー2と繊維状充填剤をサイドフィード口3から供給するなどしてもよい。

#### 繊維状充填剤

繊維状充填剤(B)の種類としては、ガラス繊維、カーボン繊維、ポリエチレン繊維、ポリプロピレン繊維、ポリエステル繊維、ポリアミド繊維、フッ素繊維

等が挙げられ、好ましくはガラス繊維、カーボン繊維である。これらは二種以上の混合物であってもよい。

これらの繊維状充填剤（B）は予めシラン系やチタン系などの各種のカップリング剤などで前処理されたものであってもよい。

ガラス繊維としては、エポキシ系、ウレタン系、アクリル系などの被覆あるいは集束剤で処理されているものでもよい。

繊維状充填剤（B）のサイドフィード前の重量平均繊維長（L）は1 mm以上、好ましくは1～10 mm、さらに好ましくは2～10 mmである。

繊維の直径は通常のもものが使用され、例えば3～15  $\mu\text{m}$ である。繊維の平均径が3  $\mu\text{m}$ より小さすぎると、補強材としての効果が小さくまた液晶性ポリマーの場合異方性緩和効果が少ない。一方、15  $\mu\text{m}$ より大きすぎると成形性が低下し、表面外観も悪化する。

また、サイドフィード前の繊維状充填剤（B）の長さに分布が無く、一定に揃っているチョップドストランドが好ましい。

#### 樹脂組成物

得られる樹脂組成物ペレット中の樹脂（A）と繊維状充填剤（B）の質量比率は、樹脂（A）55～80重量%と、繊維状充填剤（B）45～20重量%、好ましくは（A）60～70重量%と、（B）40～30重量%（ここで、樹脂（A）と繊維状充填剤（B）の合計は100重量%である。）である。

繊維状充填剤（B）の比率が多すぎると、得られる成形品の剛性が大きくなる反面、樹脂組成物の流動性が悪化して成形が困難になり、少なすぎると成形品の剛性等の物性が低下し、反り変形も悪くなる。

本発明では、押出機のメインフィード口から樹脂（A）の一部（x）を供給し、メインフィード口より押出方向後方に設けられたサイドフィード口から繊維状充填剤（B）と樹脂（A）の残り（1-x）とを重量比  $x/(1-x)$  が、50/

50～10／90、好ましくは40／60～15／85となるように供給する。

サイドフィード口から供給される樹脂（A）の量が上記範囲より多すぎても少なすぎても、折れすぎたり、折れ方が不足したりして、繊維状充填剤（B）を所定の重量平均繊維長（1）に、更には所定の繊維長分布に折ることが困難になる。

繊維状充填剤（B）をサイドフィード口から供給するには、樹脂と同時にまたは樹脂よりも上流の位置でフィードすることにより、折れ方が適切となる。

サイドフィード口3は1個所であっても2個所であってもよく、2個所にする場合、上流側サイドフィード口より繊維状充填剤を供給し、下流側サイドフィード口より樹脂を供給することが好ましい。2個所のサイドフィード口間に位置するスクリュウはフルフライトによる搬送ゾーンとすることが好ましく、混練部は下流のサイドフィード口よりさらに下流に位置することが好ましい。また、樹脂（A）の各フィード口の供給割合を多少変化させて重量平均繊維長（1）、更には繊維長分布を微調整して目標性状範囲内にすることが可能である。

得られたペレット中の繊維状充填剤（B）の重量平均繊維長（1）は180～360 $\mu\text{m}$ 、好ましくは200～300 $\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは200～270 $\mu\text{m}$ である。

ペレット中の重量平均繊維長（1）が上記範囲より短すぎると十分な高温剛性が得られなくなり、上記範囲より長すぎると、細い流路を有する成形品を成形する場合に流動不足となる。

繊維長分布も考慮することが重要であり、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（B）は、繊維長300 $\mu\text{m}$ 超のものの割合が5～40重量%、好ましくは10～30重量%であることが好ましい。

繊維長300 $\mu\text{m}$ 超のものの割合が上記範囲より多すぎると、細い流路を有する成形品を成形する場合に流動不足となり、上記範囲より少なすぎると、射出成形品の剛性や平面度等の物性が低下する。

なお、重量平均繊維長（1）およびその分布は樹脂を燃焼あるいは溶解した後、

質量測定による方法あるいは顕微鏡観察した画像の計算機処理などによって得られる。

樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（B）の重量平均繊維長（ $l$ ）及び分布が前記範囲内に保たれる範囲内において、サイドフィードされる樹脂（A）の残り（ $1 - x$ ）に加える形で、押出機ダイ５から得られたストランド又はそれから得られたペレットの一部を、循環させることもできるが、好ましくは押出機により単通処理されて得られたものである。単通処理されて得られたものでは、樹脂の物性が低下しにくい。得られたペレットを循環させる比率が多すぎたり、循環回数が多すぎると樹脂が劣化して分子量が低下したりガス発生が生じたり、繊維状充填剤（B）が折れすぎて、重量平均繊維長（ $l$ ）及び分布が前記範囲内に保たれなくなる。

押出機の運転条件としては、シリンダー温度については、例えば、ベースとなる樹脂（A）の融点温度（ $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$ の昇温速度におけるDSC測定による）～融点温度＋ $50^{\circ}\text{C}$ の範囲であり、スクリュウ回転数は例えば、 $150 \sim 500 \text{ rpm}$ である。

上記樹脂には副原料として、樹脂添加剤等が配合されていてもよい。樹脂添加剤としては、後述する低嵩密度粉体以外のものであって、可塑剤、熱安定剤、滑剤、ブロッキング防止剤、結晶化核剤、酸化防止剤、紫外線安定剤、帯電防止剤、難燃剤、流滴剤、耐水化剤、抗菌剤、防臭剤、脱臭剤、繊維状充填剤（B）以外の他の充填材（無機添加剤又は有機添加剤）、増量剤、着色剤等又はこれらの混合物が挙げられる。これらの副原料は、必要に応じてメインフィード口１及び／又はサイドフィード口３から供給される。

これらの添加剤が添加されたものも本発明に係る樹脂組成物の範囲に含まれる。

樹脂組成物ペレットの成形

上記で得られた樹脂組成物ペレットは、特に成形方法には限定はないが、好ましくは射出成形等に使用される。

樹脂組成物ペレットの溶融粘度（融点より 15℃ 高い温度、ずり速度 1000 /s）は、実施例の項で述べる方法で測定して、55 Pa·s 以下である。該溶融粘度が高すぎると、充填圧力が高くなりすぎて射出成形が困難になり、無理に充填させると成形品の反り変形量が大きくなる。

樹脂組成物ペレットを射出成形して得られた成形品は、曲げ弾性率 15000 MPa 以上であり、ハンダリフロー処理前の平面度が 0.09 mm 以下、及びピーク温度 230～280℃ でのハンダリフロー処理相当加熱前後の平面度の差が 0.02 mm 以下である。

ここで、ピーク温度とはハンダリフロー処理における最高到達温度のことである。

ハンダリフロー処理は、例えば赤外線（IR）加熱によるものが好ましく使用できる。

ハンダリフロー処理相当加熱とは、ハンダを付けず、またハンダ付けする部品を搭載せずにリフローに必要な時間、上記温度で加熱することである。必要な加熱時間は、通常通り実際にハンダ付けする場合を想定して、成形品の大きさ、形状、印刷されるハンダの種類や印刷量、搭載部品の形状、大きさ、耐熱性、生産性等を考慮の上、適宜決めればよい。

#### 半導体装置用ソケットの成形

上記の優れた平面度を有する成形品、特に半導体装置のソケットを得る方法としては、特に制限はないが、経済的な射出成形方法が好ましく用いられる。射出成形で優れた平面度を有するソケットを得るためには、前記の樹脂組成物を用いることが重要であるが、残留内部応力を生じない成形条件を選ぶことが好ましい。充填圧を低くし、得られるソケットの残留内部応力を低下させるために、成形機

のシリンダー温度は、樹脂（A）の融点 $T^{\circ}\text{C}$ 以上の温度が好ましく、またシリンダー温度が高すぎると樹脂の分解等に伴うシリンダーノズルからののはなタレ（洩垂れ）等の問題が発生するため、シリンダー温度は、 $T^{\circ}\text{C} \sim (T + 30)^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $T^{\circ}\text{C} \sim (T + 15)^{\circ}\text{C}$ である。また、金型温度は $70 \sim 100^{\circ}\text{C}$ が好ましい。金型温度が低いと充填する樹脂組成物が流動不良を起こし好ましくなく、金型温度が高すぎるとバリ発生等の問題が生じ好ましくない。射出速度は $150 \text{ mm/s}$ 以上が好ましい。射出速度が低いと未充填成形品しか得られないか、無理に完全に充填させると充填圧が高いために得られる成形品の残留内部応力が大きくなり、平面度の悪いソケットとなる場合がある。

本発明の平面状ソケットは、半導体装置用の多数のピン孔が設けられた格子部のピッチ間隔が $2.0 \text{ mm}$ 以下、好ましくは $1.5 \text{ mm}$ 以下、格子部の肉厚が $0.5 \text{ mm}$ 以下、好ましくは $0.2 \text{ mm}$ 以下、ソケットの高さが $5.0 \text{ mm}$ 以下、好ましくは $3.0 \text{ mm}$ 以下である。

本発明によれば、通常のサイドフィード口を有する押出機で、市販のガラスファイバー等の繊維状充填剤（B）を一種類使用して、繊維状充填剤のフィードを良好に行うことが可能であり、押出機で単通（ワンパス）処理して得られるので樹脂の劣化が抑えられ、上記用途に適した樹脂組成物ペレットを、極めて容易に、安定的に、且つ経済的に製造することができる。

## 実施例

以下、実施例により本発明を更に具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されるものでない。

（実施例 1 ～ 4 および比較例 1 ～ 4）

（1）使用原料

樹脂（A）

液晶性ポリマーペレット：ポリプラスチックス（株）製、ベクトラE950i  
（融点335℃、熔融粘度30Pa・s（350℃、ずり速度100/s）、ペ  
レット寸法：約5～3mm×約3～2mm×約3～1mm）

繊維状充填剤（B）

ガラス繊維（GFと略す）：旭ファイバーグラス社製、CS03JA419  
（繊維径10μm、繊維長3mmのチョップドストランド）

樹脂添加剤

滑剤：日本油脂（株）製、ユニスターH-476

（2）押出機

三菱重工業（株）製、2軸スクリュウ押出機PTE65（スクリュウ径65m  
m、L/D36.8）

押出機のスクリュウの概略を図1に示す。

メインフィード口1：C1

可塑化部2：C4～C5（構成：上流側より順ニーディング、逆ニーディング、  
長さ300mm）

サイドフィード口3：C7

混練部4：C8～C11（構成：上流側より順ニーディング、逆ニーディング、  
順ニーディング、逆ニーディング、逆フライト、順ニーディング、逆ニーディ  
ング、逆フライト、長さ520mm）

メインフィード口へのフィーダー：クボタ社製スクリュウ式ロスインウェイト式  
フィーダー

サイドフィード口へのフィーダー

ペレット樹脂用：クボタ社製2軸スクリュウサイドフィーダー

ガラス繊維用：鎌長製衡社製ベルト式ロスインウェイト式フィーダー

（3）押出条件

シリンダー温度：メインフィード口1が設けられたシリンダーC1のみが20

0℃であり、他のシリンダー温度は全て350℃である。

ダイ温度：350℃

#### (4) 樹脂組成物の混練及び押出方法

上記2軸スクリー押出機を用い、液晶性ポリマーのペレットをメインフィード口1及びサイドフィード口3から供給し、滑剤をメインフィード口1から、ガラス繊維をサイドフィード口3から供給した。副原料フィード口には、2軸サイドフィーダーを用いて供給し、液晶性ポリマーペレット、滑剤、ガラス繊維の供給量は、表1の割合になるように、重量フィーダーを用いて制御した。

スクリー回転数及び押出量は、表1のように設定し、ダイ5よりストランド状に吐出させた熔融樹脂組成物を、タナカ製作所製メッシュベルトコンベアで搬送しつつ、スプレー噴霧水により冷却した後、カッティングされ、ペレットとした。

#### (樹脂組成物の熔融粘度)

上記ペレットを用いて、 $L = 20\text{ mm}$ 、 $d = 1\text{ mm}$ のキャピラリー式レオメータ（（株）東洋精機製キャピログラフ1B型）を使用し、温度350℃、せん断速度1000/sでISO 11443に準拠して、熔融粘度を測定した。

#### (ペレット中のガラス繊維の重量平均繊維長(1)の測定)

樹脂組成物ペレット5gを600℃で2時間加熱し、灰化した。灰化残渣を5%ポリエチレングリコール水溶液に十分分散させた後、スポイトでシャーレに移し、顕微鏡でガラス繊維を観察した。同時に画像解析装置（株）ニレコ製LUX FSを用いてガラス繊維の重量平均繊維長(1)を測定した。尚、画像解析の際には、重なり合った繊維を別々の繊維に分離し、それぞれの長さを求めるようなサブルーチンを適用した。尚、50μm以下のガラス繊維は除外して測定した。

#### (ペレットの射出成形)

上記押出成形で得られたペレットから射出成形機により下記試験片を作製し、



評価し、表 2 に示す結果を得た。

射出成形機：ファナック（株）製、FANUC  $\alpha-50C$ （中径ロングノズル使用）

シリンダー温度：350℃（ノズル側）－350℃－340℃－330℃

金型温度：80℃

射出速度：200mm/sec

保圧力：29MPa

充填時間：0.08sec

保圧時間：1sec

冷却時間：5sec

スクリー回転数：120rpm

スクリー背圧：0.5MPa

（成形品の曲げ弾性率）

ISO 178に準拠して、測定した。

（ソケットの平面度の測定）

樹脂組成物ペレットから、下記成形条件で、図 2 に示すような、全体の大きさ 39.82mm×36.82mm×1mm（厚み）、中央部に 19.02mm×19.02mm の孔開き（半導体装置設置用の孔）を有し、孔開き周辺部に多数のピン孔が設けられた格子部を有し、格子部のピッチ間隔 1.2mm の平面状ソケット（ピン孔数 494 ピン、格子部の肉厚 0.18mm）を射出成形した。尚、ゲートは樹脂溜り反対面からのフィルムゲートを用い、ゲート厚みは 3mm とした。

図 2（a）は多数のピン孔が格子状に設けられたソケットの上面図、図 2（d）は図 2（a）の A 部詳細であり、図 2（b）はフィルムゲート側から見た側面図、図 2（c）は上方に樹脂溜まりを有する側面図、図 2（e）は図 2（c）の B 部詳細である。

得られたソケットを水平な机の上に静置し、ソケットの高さをミットヨ製クイックビジョン404PROCNC画像測定機により測定した。その際、ソケット端面より0.5mmの位置を10mm間隔で測定し、最大高さと最小高さの差を平面度とした。

更に、日本パルス技術研究所製大型卓上リフローハンダ付け装置RF-300を使用し、ハンダ印刷及び部品の搭載をしないで、ハンダリフローに相当する条件、即ちピーク温度250℃、同温度での加熱温度5分の条件で加熱した後、上述の方法で平面度を測定し、これをハンダリフロー前後の平面度の差とした。

表1 (フィード方法、組成及び押出し条件)

	メインフィード口1からの添加量 (重量%)		サイドフィード口3からの添加量 (重量%)		樹脂供給比 X/(1-X)	回転数 (rpm)	押出量 (kg/h)
	樹脂 (X)	滑剤	樹脂 (1-X)	GF			
実施例1	29.7	0.3	30	40	49.7/50.3	290	350
実施例2	19.7	0.3	40	40	33/67	290	350
実施例3	9.7	0.3	50	40	16.2/83.7	290	350
実施例4	19.7	0.3	50	30	24.6/75.4	290	250
比較例1	34.7	0.3	25	40	58.1/41.9	290	350
比較例2	44.7	0.3	25	30	55.9/44.1	290	250
比較例3	59.7	0.3	0	40	—	290	250
比較例4	樹脂59.7重量%、滑剤0.3重量%、GF40重量%をメインフィード口1から添加した。					290	250

表 2 (樹脂組成物、同ペレット、射出成形品の物性等)

	重量平均 繊維長 ( $\mu\text{m}$ )	300 $\mu\text{m}$ 以上 の繊維比率 (重量%)	熔融 粘度 ( $\text{Pa}\cdot\text{s}$ )	曲げ 弾性率 ( $\text{GPa}$ )	リフロー前 平面度 ( $\text{mm}$ )	リフロー前後 平面度差 ( $\text{mm}$ )
実施例 1	337	34.2	47	16.0	0.075	0.014
実施例 2	245	22.5	40	15.6	0.047	0.010
実施例 3	206	19.4	38	14.3	0.057	0.009
実施例 4	279	26.8	44	15.8	0.059	0.010
比較例 1	374	43.6	47	16.9	0.092	0.010
比較例 2	415	55.1	49	18.0	完全充填できず	
比較例 3	420	57.9	51	18.3	完全充填できず	
比較例 4	150	10.4	35	13.2	0.071	0.068

## 産業上の利用可能性

本発明によれば、所望の充填量の繊維状充填剤の樹脂組成物ペレットにおいて、繊維状充填剤が、均一に配合され、求める重量平均繊維長(1)を有し、射出成形品にした場合に特定の性能を有する樹脂組成物ペレットを、通常押出機により簡便な方法で、樹脂の劣化を抑え、経済的に、樹脂組成物ペレットを製造することができる。

特に、格子部のピッチ間隔が2.0 mm以下、格子部の肉厚が0.5 mm以下、製品全体の高さが5.0 mm以下の半導体装置用平面状ソケットに用いられる樹脂組成物ペレットを製造することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 樹脂 (A) 80～55重量%と、重量平均繊維長 (L) 1mm以上の繊維状充填剤 (B) 20～45重量% (ここで、樹脂 (A) と繊維状充填剤 (B) の合計は100重量%である。) を押出機に供給して、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤 (B) の重量平均繊維長 (1) が180～360  $\mu\text{m}$ である樹脂組成物ペレットを製造する際に、

押出機のメインフィードロから樹脂 (A) の一部の量 (x) を供給し、メインフィードロより押出方向後方に設けられたサイドフィードロから繊維状充填剤 (B) および樹脂 (A) の残りの量 (1-x) を  $x / (1-x)$  が50/50～10/90重量%比となるように供給する樹脂組成物ペレットの製造方法。

2. 樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤 (B) が、繊維長300  $\mu\text{m}$ 超のものの割合が5～40重量%である請求項1に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

3. 樹脂組成物ペレットが、押出機により単通処理されて得られたものである請求項1又は2に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

4. 樹脂 (A) が液晶性ポリマーである請求項1～3のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

5. 繊維状充填剤 (B) が、ガラス繊維及び／又はカーボン繊維である請求項1～4のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

6. 多数のピン孔が設けられた格子部のピッチ間隔が2.0mm以下、格子部の肉厚が0.5mm以下、ソケットの高さが5.0mm以下の平面状ソケットに用いられる請求項1～5のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

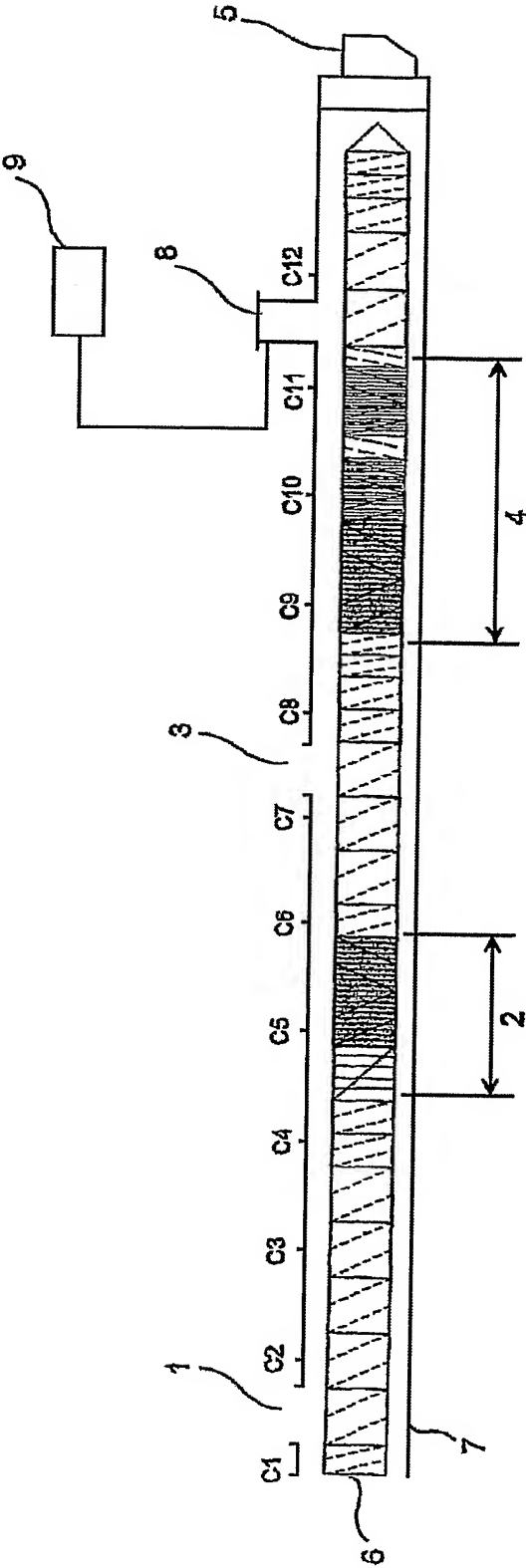
7. 押出機が2軸押出機であり、スクリュー長さ／スクリュー径 (L/D) の比が20以上であり、スクリューが可塑化部と混練部を有し、サイドフィードロが可塑化部の下流に位置する請求項1～6のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペ

レットの製造方法。

8. 樹脂組成物ペレットの溶融粘度が $10 \sim 55 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ である請求項1～7のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

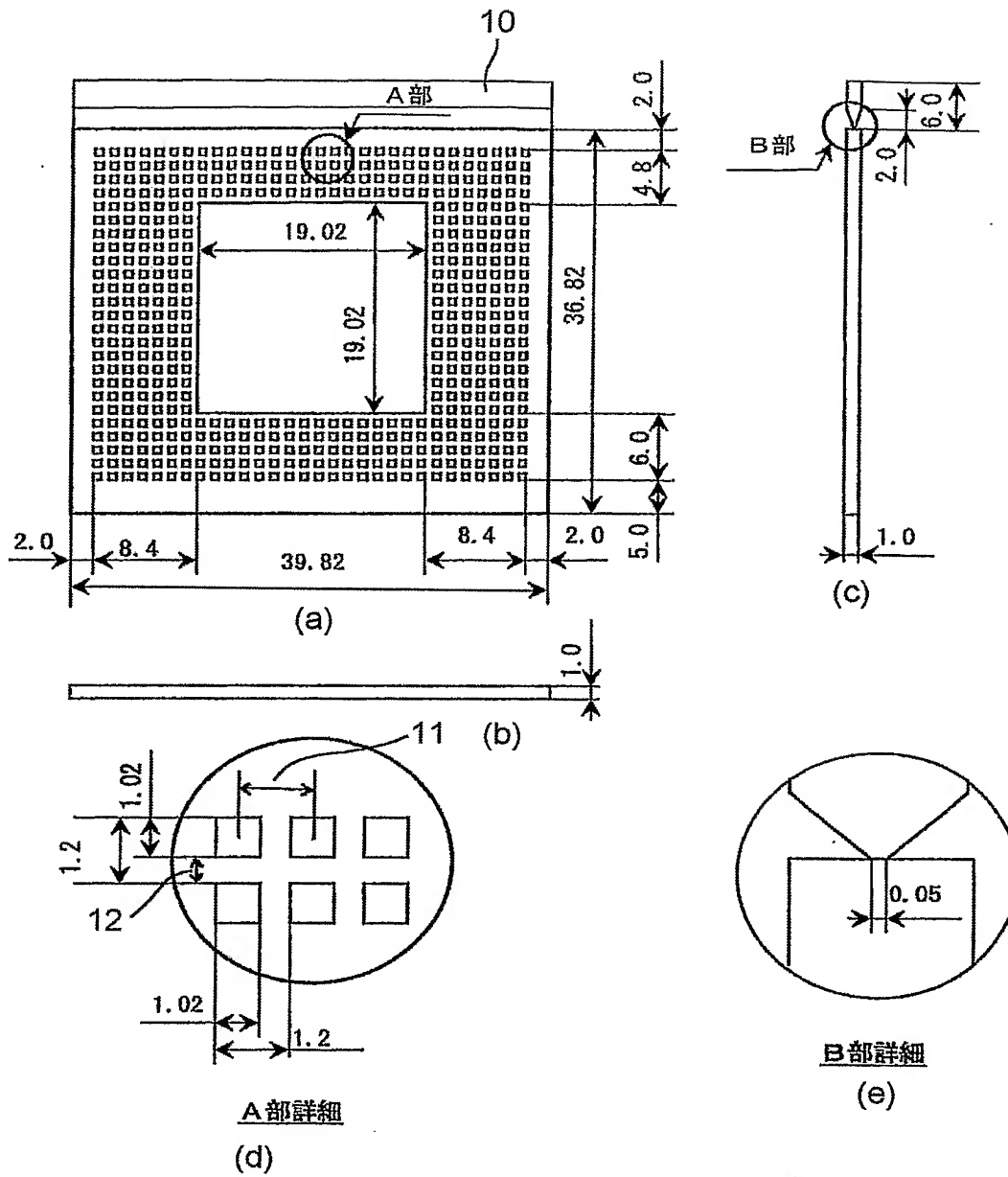
9. 樹脂組成物ペレットを射出成形して得られた成形品が、  
曲げ弾性率 $15000 \text{ MPa}$ 以上、及びハンダリフロー処理前の平面度が $0.09 \text{ mm}$ 以下、及びピーク温度 $230 \sim 280^\circ\text{C}$ でのハンダリフロー処理相当加熱前後の平面度の差が $0.02 \text{ mm}$ 以下である請求項1～8のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

第 1 図



2 / 2

第2図



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/007368

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> B29B9/14, 11/10, 11/16, C08K7/04//B29K105:12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> B29B7/00-11/16, B29C47/00-4796, C08J5/04-5/10, 5/24, C08K7/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 59-26237 A (Automatik Apparate-Maschinenbau H. Hench GmbH.), 10 February, 1984 (10.02.84), Page 4, upper right column, lines 10 to 16; page 5, upper left column, lines 2 to 4; Fig. 1 & US 4534652 A column 4, lines 32 to 40; column 5, lines 27 to 29; Fig. 1 & EP 0087699 A1	1-9
A	JP 6-238655 A (Mitsubishi Kasei Corp.), 20 June, 1994 (20.06.94), Claim 1; Fig.1 (Family: none)	1-9



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

14 June, 2005 (14.06.05)

Date of mailing of the international search report

05 July, 2005 (05.07.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/007368

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 10-258424 A (Kishimoto Sangyo Co., Ltd.), 29 September, 1998 (29.09.98), Claim 1; Fig. 1 & CN 1085223 B	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
 Int.Cl.<sup>7</sup> B29B9/14, 11/10, 11/16, C08K7/04 // B29K105:12

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.<sup>7</sup> B29B7/00-11/16, B29C47/00-4796, C08J5/04-5/10, 5/24, C08K7/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 59-26237 A (アウトマテイツク・アパラーテ・マシーネンバウ・ハー・ヘンチ・ゲゼルシヤフト・ミット・ベシユレンクタ・ハフツング) 1984.02.10, 第4頁右上欄第10行-第16行、第5頁左上欄第2行-第4行、第1図 & US 4534652 A、第4欄第32行-第40行、第5欄第27行-第29行、第1図 & EP 0087699 A1	1-9
A	JP 6-238655 A (三菱化成株式会社) 1994.06.20, 請求項1、第1図 (ファミリーなし)	1-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14.06.2005

国際調査報告の発送日

05.7.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

大島 祥吾

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

4F

3341

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 10-258424 A (岸本産業株式会社) 1998.09.29, 請求項1、第1 図 & CN 1085223 B	1-9